

## REQUETE PCT

Original (pour PRESENTATION) - imprimé le 09.12.1999 03:45:59 PM

0 0-1	Réservé à l'office récepteur Demande internationale No.	<b>PCT/EP 99 / 09798</b>
0-2	Date du dépôt international	<b>10 DEC 1999</b> (10. 12 1999)
0-3	Nom de l'office récepteur et "Demande internationale PCT"	OFFICE EUROPEEN DES BREVETS DEMANDE INTERNATIONALE PCT
0-4 0-4-1	Formulaire - PCT/RO/101 Requête PCT Préparé avec la version:	PCT-EASY Version 2.84 (mis à jour 01.06.1999)
0-5	Pétition Le soussigné requiert que la présente demande internationale soit traitée conformément au Traité de coopération en matière de brevets	
0-6	Office récepteur (choisi par le déposant)	Office européen des brevets (OEB) (RO/EP)
0-7	Référence du dossier du déposant ou du mandataire	S 99/06
I	Titre de l'invention	COMPOSITIONS COMPRENANT DU 1,1,1,3,3-PENTAFLUOROBUTANE ET UTILISATION DE CES COMPOSITIONS
II II-1 II-2 II-4 II-5	Déposant Cette personne est : Déposant pour Nom Adresse:	Déposant seulement Tous les Etats désignés sauf US SOLVAY (Société Anonyme) Rue du Prince Albert, 33 B-1050 BRUXELLES Belgique
II-6 II-7 II-8 II-9	Nationalité (nom de l'Etat) Résidence (nom de l'Etat) No. de téléphone No de télécopieur:	BE BE 32-2-509.61.11 32-2-509.66.17
III-1 III-1-1 III-1-2 III-1-4 III-1-5	Déposant et/ou inventeur Cette personne est : Déposant pour Nom (NOM DE FAMILLE, Prénom) Adresse:	Déposant et inventeur US seulement DOURNEL, Pierre Rue des Chevaliers, 6 B-1050 BRUXELLES Belgique
III-1-6 III-1-7	Nationalité (nom de l'Etat) Résidence (nom de l'Etat)	FR BE

## REQUETE PCT

S 99/06

Original (pour PRESENTATION) - imprimé le 09.12.1999 03:45:59 PM

III-2	Déposant et/ou inventeur	Déposant et inventeur
III-2-1	Cette personne est :	US seulement
III-2-2	Déposant pour	BARTHELEMY, Pierre
III-2-4	Nom (NOM DE FAMILLE, Prénom)	Rue Fond du Village, 23A
III-2-5	Adresse:	B-1315 PIETREBAIS
		Belgique
III-2-6	Nationalité (nom de l'Etat)	BE
III-2-7	Résidence (nom de l'Etat)	BE
IV-1	Mandataire ; Représentant commun ou adresse pour la correspondance. La personne nommée ci-dessous est/a été désignée pour agir au nom du ou des déposants auprès des autorités internationales compétentes, comme	mandataire
IV-1-1	Nom (NOM DE FAMILLE, Prénom)	JACQUES, Philippe
IV-1-2	Adresse:	Département de la Propriété Industrielle Rue de Ransbeek, 310 B-1120 BRUXELLES Belgique
IV-1-3	No. de téléphone	32-2-264.21.11
IV-1-4	No de télécopieur:	32-2-264.29.55
IV-2	Mandataire(s) supplémentaire(s)	Mandataires supplémentaires ayant la même adresse que le mandataire nommé en premier
IV-2-1	Nom(s)	ANTHOINE, Paul; DECAMPS, Alain; DUFRASNE, Eugène; EISCHEN, Roland; VANDE GUCHT, Anne; SOLVAY (Société Anonyme)
V	Désignation d'Etats	TZ <sup>Δ</sup>
V-1	Brevet régional (d'autres formes de protection ou de traitement, le cas échéant, sont spécifiées entre parenthèses pour les Etats désignés concernés)	AP: GH GM KE LS MW SD SL SZ UG ZW et tout autre Etat qui est un Etat contractant du Protocole de Harare et du PCT EA: AM AZ BY KG KZ MD RU TJ TM et tout autre Etat qui est un Etat contractant de la Convention sur le brevet eurasien et du PCT EP: AT BE CH & LI CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LU MC NL PT SE et tout autre Etat qui est un Etat contractant de la Convention sur le brevet européen et du PCT OA: BF BJ CF CG CI CM GA GN GW ML MR NE SN TD TG et tout autre Etat qui est un Etat membre de l'OAPI et un Etat contractant du PCT

R0/EP

## REQUETE PCT

S 99/06

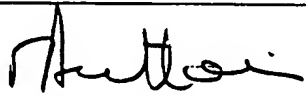
Original (pour PRESENTATION) - imprimé le 09.12.1999 03:45:59 PM

V-2	Brevet national (d'autres formes de protection ou de traitement, le cas échéant, sont spécifiées entre parenthèses pour les Etats désignés concernés)	AE AL AM AT AU AZ BA BB BG BR BY CA CH&LI CN CR CU CZ DE DK DM EE ES FI GB GD GE GH GM HR HU ID IL IN IS JP KE KG KP KR KZ LC LK LR LS LT LU LV MD MG MK MN MW MX NO NZ PL PT RO RU SD SE SG SI SK SL TJ TM TR TT TZ UA UG US UZ VN YU ZA ZW
V-3	Brevet national (Etats devenus parties au PCT après la diffusion de la présente version du logiciel EASY)	MA
V-5	Déclaration concernant les désignations de précaution Outre les désignations faites sous les rubriques V-1, V-2 et V-3, le déposant fait aussi, conformément à la règle 4.9.b), toutes les désignations qui seraient autorisées en vertu du PCT, à l'exception de toute désignation(s) indiquée(s) dans la rubrique V-6 ci-dessous. Le déposant déclare que ces désignations additionnelles sont faites sous réserve de confirmation et que toute désignation qui n'est pas confirmée avant l'expiration d'un délai de 15 mois à compter de la date de priorité sera considérée comme retirée par le déposant à l'expiration de ce délai.	
V-6	Exclusion(s) des désignations de précaution	NEANT
VI-1	Revendication de priorité d'une demande internationale antérieure	
VI-1-1	Date du dépôt	12 décembre 1998 (12.12.1998)
VI-1-2	Numéro	PCT/EP98/08160
VI-1-3	Office récepteur PCT	EP
VI-2	Revendication de priorité d'une demande régionale antérieure	
VI-2-1	Date du dépôt	12 mars 1999 (12.03.1999)
VI-2-2	Numéro	99200762.5
VI-2-3	Office régional	EP
VI-3	Requête pour le document de priorité L'office récepteur est prié de préparer et de transmettre au Bureau international une copie certifiée conforme de la ou des demandes antérieures mentionnées ci-dessus sous la/les rubriques:	VI-1, VI-2
VII-1	Administration chargée de la recherche internationale choisie	Office européen des brevets (OEB) (ISA/EP)
VII-2	Demande d'utilisation des résultats d'une recherche antérieure; mention de cette recherche	
VII-2-1	Date	04 août 1999 (04.08.1999)
VII-2-2	Numéro	EP99200762
VII-2-3	Pays (ou office régional)	EP

## REQUETE PCT

S 99/06

Original (pour PRESENTATION) - imprimé le 09.12.1999 03:45:59 PM

VIII	<b>Bordereau</b>	Nombre de feuilles	Dossier(s) électronique(s) joint(s)
VIII-1	Requête	4	-
VIII-2	Description	17	-
VIII-3	Revendications	2	-
VIII-4	Abrégé	1	s 9906.txt
VIII-5	Dessins	0	-
VIII-7	TOTAL	24	
	<b>Eléments joints</b>	Document(s) papier joint(s)	Dossier(s) électronique(s) joint(s)
VIII-8	Feuille de calcul des taxes	✓	-
VIII-10	Copie du pouvoir général	référence n° 39542	-
VIII-16	Disquette PCT-EASY	-	disquette
VIII-18	Figure des dessins qui doit accompagner l'abrégé		
VIII-19	Langue de dépôt de la demande internationale	français	
IX-1	Signature du déposant ou du mandataire		
IX-1-1	Nom (NOM DE FAMILLE, Prénom)	ANTHOINE, Paul	

## RESERVE A L'OFFICE RECEPTEUR

10-1	Date effective de réception des pièces supposées constituer la demande internationale	10 DEC 1999 (10. 12 1999)
10-2	Dessins:	
10-2-1	Reçus	
10-2-2	non reçus	
10-3	Date effective de réception, rectifiée en raison de la réception ultérieure, mais dans les délais, de documents ou de dessins complétant ce qui est supposé constituer la demande internationale:	
10-4	Date de réception, dans les délais, des corrections demandées selon l'article 11.2) du PCT	
10-5	Administration chargée de la recherche internationale	ISA/EP
10-6	Transmission de la copie de recherche différée jusqu'au paiement de la taxe de recherche	

## RESERVE AU BUREAU INTERNATIONAL

11-1	Date de réception de l'exemplaire original par le Bureau international	
------	--	--

Preliminary amendment :

The following modifications of the specification, which were introduced during the Interational Phase according to Art. 34 PCT should be inserted into the text of the specification :

On p.4 after line 13 insert :

« Halogenated hydrocarbons, and aliphatic, alicyclic or aromatic esters or ketones are also suitable as non-fluoro organic solvent. »

On p.6 after line 37 insert :

« Particular examples of the compositions according to the invention comprise 1,1,1,3,3-pentafluorobutane and a non-fluoro organic solvent in proportions in which they form an azeotrope or a pseudo-azeotrope. »

These modifications were made in order to bring the specification into conformity with claims 3 and 5.

CLAIMS

1. A composition comprising 1,1,1,3,3-pentafluorobutane and more than 5% by weight of at least one non-flammable fluoro compound presenting no flash point according to standard Iso 1523, selected from hydrofluorocarbons comprising at least 5 carbon atoms, perfluorocarbons, fluoroamines and fluoro ethers.
2. The composition according to Claim 1 comprising in addition at least one non-fluoro organic solvent.
3. The composition according to Claim 2, in which the non-fluoro organic solvent is selected from hydrocarbons, halohydrocarbons, aliphatic, alicyclic or aromatic esters or ketones, and alcohols or ethers.
4. The composition according to Claim 3, in which the non-fluoro organic solvent is ethyl acetate, 1,2-dichloroethylene, methanol, ethanol, isopropanol or isobutanol.
5. The composition according to Claim 2, comprising 1,1,1,3,3-pentafluorobutane and the non-fluoro organic solvent in proportions in which they form an azeotrope or a pseudo-azeotrope.
6. The composition according to Claim 1, comprising a surfactant, preferably of imidazoline or alkylbenzenesulphonate type.
7. The composition according to any one of Claims 1 to 6, in which the non-flammable fluoro compound is selected from 2,3-dihydrodecafluoropentane (HFC-43-10mee), perfluorotriethylamine, perfluorobutyl methyl ether, perfluoropentane and perfluorohexane.
8. The composition according to Claim 1, comprising 1,1,1,3,3-pentafluorobutane and at least one perfluorocarbon in proportions in which they form an azeotrope or a pseudo-azeotrope.
9. The composition according to Claim 8, comprising an azeotropic or pseudo-azeotropic mixture consisting essentially of from 40 to 80% by weight of 1,1,1,3,3-pentafluorobutane and from 20 to 60% by weight of perfluorohexane, or comprising an azeotropic or pseudo-azeotropic mixture consisting essentially of from 13 to 50% by weight of 1,1,1,3,3-pentafluorobutane and from 50 to 87% by weight of perfluoropentane.

10. A method selected from a method involving use of a solvent, a method for drying, a method for degreasing, a method for fixing a toner, a method for refrigerating, a method for exchanging heat, wherein a composition according to any one of Claims 1 to 4 is used.

11. The method according to Claim 10, wherein the composition is used as a product to replace a chlorofluorocarbon selected from CFC-11 (trichlorofluoromethane) and CFC-113 (1,1,2-trichlorotrifluoroethane).

Case S 99106

Amendments under Article ~~19~~ 34



compositions containing from 32 to 42% by weight approximately of perfluoro-hexane are particularly preferred. Binary compositions containing from 35 to 40% by weight approximately of perfluorohexane are most particularly preferred. At a pressure of  $101.2 \pm 0.5$  kPa, the binary composition consisting essentially of about 64% by weight of 1,1,1,3,3-pentafluorobutane and about 36% by weight of perfluorohexane constitutes a true azeotrope whose boiling point is about 36.4°C. This composition is most particularly preferred.

The invention also relates to compositions comprising 1,1,1,3,3-pentafluorobutane, at least one non-flammable fluoro compound and at least one non-fluoro organic solvent. The non-flammable fluoro compounds mentioned above are preferred as non-flammable fluoro compounds.

Non-fluoro organic solvents which are suitable for use, for example, are hydrocarbons, chlorohydrocarbons, alcohols, esters, ketones or ethers.

Halogenated hydrocarbons, and aliphatic, alicyclic or aromatic esters or ketones are also suitable as non-fluoro organic solvent.

The hydrocarbons which can be used in the compositions according to the invention may be linear, branched or cyclic and generally contain 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11 or 12 carbon atoms. Hydrocarbons comprising at least 5 carbon atoms are suitable for use. The hydrocarbons preferably comprise at least 6 carbon atoms.

Among the alkanes or alkenes, compounds comprising from 5 to 12 carbon atoms are preferred. n-Hexane, n-heptane and n-octane are suitable for use. Among the aromatic hydrocarbons which are preferred are those comprising at least one alkyl substituent on a benzene ring. Toluene, 1,2-xylene, 1,3-xylene, 1,4-xylene or mixtures thereof are most particularly preferred.

The chlorohydrocarbons which can be used in the compositions according to the invention may be linear, branched or cyclic and generally contain 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9 or 10 carbon atoms. Chlorohydrocarbons comprising 1, 2, 3 or 4 carbon atoms are suitable for use. The chlorohydrocarbons preferably comprise 1 or 2 carbon atoms. Among the chloroalkanes, dichloromethane, trichloromethane and 1,2-dichloroethane are preferred. Among the chloroalkenes, perchloroethylene and 1,2-dichloroethylene are preferred. trans-1,2-Dichloroethylene is most particularly preferred.

1,2-Dichloroethylene has the property of forming azeotropic or pseudo-azeotropic mixtures with 1,1,1,3,3-pentafluorobutane, which can have advantages for certain applications. Azeotropic or pseudo-azeotropic mixtures as well as ternary azeotropic or pseudo-azeotropic mixtures also comprising an alkanol are described in US patent 5 478 492 in the name of the Applicant, the content of which is incorporated by reference into the present patent application.

serted  
Amend.  
der Art. 34 {

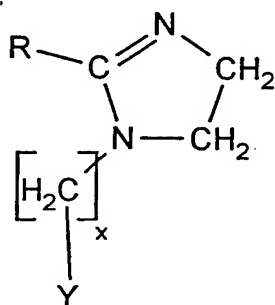
weight. When a non-fluoro organic solvent is present, its content is generally at least 1% by weight. Preferably, it is at least 2% by weight.

Particular examples of the compositions according to the invention comprise 1,1,1,3,3-pentafluorobutane and a non-fluoro organic solvent in proportions in which they form an azeotrope or a pseudo-azeotrope.

The compositions according to the invention optionally contain a surfactant. Any surfactant which is well known per se and which is compatible with the compositions according to the invention can be used. Advantageously, the surfactant is used with compositions according to the invention comprising at least one non-fluoro organic solvent, as described above. The reason for this is that these compositions are particularly suitable for achieving a good solubility of the surfactant while at the same time retaining good properties as regards the non-flammability of the compositions.

A number of surfactants which can be used in the compositions according to the invention are described, for example, in Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, 5<sup>th</sup> edition, 1987, vol. A8, pp. 338-350. Cationic, anionic, nonionic and amphoteric surfactants can be used. It is possible, for example, to use fatty acids, fatty esters, alkylbenzenesulphonates, alkanesulphonates,  $\alpha$ -olefin sulphonates,  $\alpha$ -sulphonated fatty acid esters (SES), alkyl sulphates, alkyl ether sulphates, quaternary ammonium compounds, polyethylene glycol alkyl ethers, polyethylene glycol phenyl ethers, fatty acid alkanolamides, polyglycol fatty alkyl ethers, ethylene oxide and propylene oxide block copolymers, alkylbetaines, alkylsulphobetaines, tetraalkylammonium salts of mono- or dialkylphosphoric acids or surfactants comprising at least one imidazoline group. It is also possible to use surfactants such as those described above containing at least one fluorine substituent. More specifically, surfactants comprising at least one polyfluoro alkyl chain or a polyfluoro aromatic substituent can be used.

In compositions according to the invention which can be used, in particular, as drying agents, a surfactant of imidazoline type is preferably used. In a particularly preferred manner, the imidazoline corresponds to the formula:



noted  
Amend.  
Index Act.  
34

5

10

15

20

25

30

CLAIMS

1. Compositions comprising 1,1,1,3,3-pentafluorobutane and more than 5% by weight of at least one non-flammable fluoro compound selected from  
5 hydrofluorocarbons comprising at least 5 carbon atoms, perfluorocarbons, fluoroamines and fluoro ethers.
2. Compositions according to Claim 1, comprising in addition at least one non-fluoro organic solvent.
3. Compositions according to Claim 2, in which the non-fluoro organic solvent  
10 is selected from hydrocarbons, halohydrocarbons, aliphatic, alicyclic or aromatic esters or ketones, and alcohols or ethers.
4. Compositions according to Claim 2 or 3, in which the non-fluoro organic solvent is ethyl acetate, 1,2-dichloroethylene, methanol, ethanol, isopropanol or isobutanol.
- 15 5. Compositions according to any one of Claims 2 to 4, comprising 1,1,1,3,3-pentafluorobutane and a non-fluoro organic solvent in proportions in which they form an azeotrope or a pseudo-azeotrope.
6. Compositions according to any one of Claims 1 to 5, comprising a surfactant, preferably of imidazoline or alkylbenzenesulphonate type.
- 20 7. Compositions according to any one of Claims 1 to 6, in which the non-flammable fluoro compound is 2,3-dihydrodecafluoropentane (HFC-43-10mee), perfluorotriethylamine, perfluorobutyl methyl ether, perfluoropentane or perfluorohexane.
8. Compositions according to any one of Claims 1 to 7, comprising  
25 1,1,1,3,3-pentafluorobutane and at least one perfluorocarbon in proportions in which they form an azeotrope or a pseudo-azeotrope.
9. Composition according to Claim 8, comprising an azeotropic or pseudo-azeotropic mixture consisting essentially of from 40 to 80% by weight of  
1,1,1,3,3-pentafluorobutane and from 20 to 60% by weight of perfluorohexane, or  
30 comprising an azeotropic or pseudo-azeotropic mixture consisting essentially of from 13 to 50% by weight of 1,1,1,3,3-pentafluorobutane and from 50 to 87% by weight of perfluoropentane.

10. Use of the compositions according to any one of Claims 1 to 9, in applications as solvents, drying agents, degreasing solvents, toner-fixing agents, refrigerants or heat-exchange fluids.
11. Use according to Claim 10, as a product to replace CFC-11  
5 (trichlorofluoromethane) or as a product to replace CFC-113 (1,1,2-trichlorotrifluoroethane).

# TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS

## PCT

### RAPPORT D'EXAMEN PRELIMINAIRE INTERNATIONAL

(article 36 et règle 70 du PCT)


Référence du dossier du déposant ou du mandataire S 99/06	<b>POUR SUITE A DONNER</b> voir la notification de transmission du rapport d'examen préliminaire international (formulaire PCT/IPEA/416)	
Demande internationale n° PCT/EP99/09798	Date du dépôt international (jour/mois/année) 10/12/1999	Date de priorité (jour/mois/année) 12/12/1998
Classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois classification nationale et CIB C09K5/04		
Déposant SOLVAY (SOCIETE ANONYME) et al.		

1. Le présent rapport d'examen préliminaire international, établi par l'administration chargée de l'examen préliminaire international, est transmis au déposant conformément à l'article 36.
2. Ce RAPPORT comprend 6 feuilles, y compris la présente feuille de couverture.
  - ☒ Il est accompagné d'ANNEXES, c'est-à-dire de feuilles de la description, des revendications ou des dessins qui ont été modifiées et qui servent de base au présent rapport ou de feuilles contenant des rectifications faites auprès de l'administration chargée de l'examen préliminaire international (voir la règle 70.16 et l'instruction 607 des Instructions administratives du PCT).

Ces annexes comprennent 6 feuilles.

3. Le présent rapport contient des indications relatives aux points suivants:

- I ☒ Base du rapport
- II ☐ Priorité
- III ☐ Absence de formulation d'opinion quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle
- IV ☐ Absence d'unité de l'invention
- V ☒ Déclaration motivée selon l'article 35(2) quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle; citations et explications à l'appui de cette déclaration
- VI ☐ Certains documents cités
- VII ☒ Irrégularités dans la demande internationale
- VIII ☒ Observations relatives à la demande internationale

Date de présentation de la demande d'examen préliminaire internationale  11/07/2000	Date d'achèvement du présent rapport  06.04.2001
Nom et adresse postale de l'administration chargée de l'examen préliminaire international:   Office européen des brevets D-80298 Munich Tél. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Fonctionnaire autorisé  Gerber, M  N° de téléphone +49 89 2399 8528



# RAPPORT D'EXAMEN PRÉLIMINAIRE INTERNATIONAL

Demande internationale n° PCT/EP99/09798

## I. Base du rapport

1. En ce qui concerne les éléments de la demande internationale (*les feuilles de remplacement qui ont été remises à l'office récepteur en réponse à une invitation faite conformément à l'article 14 sont considérées dans le présent rapport comme "initialement déposées" et ne sont pas jointes en annexe au rapport puisqu'elles ne contiennent pas de modifications (règles 70.16 et 70.17)*):

### Description, pages:

1-3,5-7,9-17	version initiale	
4,4a,8,8a	reçue(s) avec télécopie du	01/12/2000

### Revendications, N°:

1-11	reçue(s) avec télécopie du	01/12/2000
------	----------------------------	------------

2. En ce qui concerne la **langue**, tous les éléments indiqués ci-dessus étaient à la disposition de l'administration ou lui ont été remis dans la langue dans laquelle la demande internationale a été déposée, sauf indication contraire donnée sous ce point.

Ces éléments étaient à la disposition de l'administration ou lui ont été remis dans la langue suivante: , qui est :

- ☐ la langue d'une traduction remise aux fins de la recherche internationale (selon la règle 23.1(b)).
- ☐ la langue de publication de la demande internationale (selon la règle 48.3(b)).
- ☐ la langue de la traduction remise aux fins de l'examen préliminaire internationale (selon la règle 55.2 ou 55.3).

3. En ce qui concerne les **séquences de nucléotides ou d'acide aminés** divulguées dans la demande internationale (le cas échéant), l'examen préliminaire internationale a été effectué sur la base du listage des séquences :

- ☐ contenu dans la demande internationale, sous forme écrite.
- ☐ déposé avec la demande internationale, sous forme déchiffrable par ordinateur.
- ☐ remis ultérieurement à l'administration, sous forme écrite.
- ☐ remis ultérieurement à l'administration, sous forme déchiffrable par ordinateur.
- ☐ La déclaration, selon laquelle le listage des séquences par écrit et fourni ultérieurement ne va pas au-delà de la divulgation faite dans la demande telle que déposée, a été fournie.
- ☐ La déclaration, selon laquelle les informations enregistrées sous déchiffrable par ordinateur sont identiques à celles du listage des séquences Présenté par écrit, a été fournie.

4. Les modifications ont entraîné l'annulation :

- ☐ de la description, pages :

**RAPPORT D'EXAMEN  
PRÉLIMINAIRE INTERNATIONAL**

Demande internationale n° PCT/EP99/09798

- ☐ des revendications, n<sup>os</sup> :  
☐ des dessins, feuilles :

5. ☐ Le présent rapport a été formulé abstraction faite (de certaines) des modifications, qui ont été considérées comme allant au-delà de l'exposé de l'invention tel qu'il a été déposé, comme il est indiqué ci-après (règle 70.2(c)) :

*(Toute feuille de remplacement comportant des modifications de cette nature doit être indiquée au point 1 et annexée au présent rapport)*

6. Observations complémentaires, le cas échéant :

**V. Déclaration motivée selon l'article 35(2) quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle; citations et explications à l'appui de cette déclaration**

**1. Déclaration**

Nouveauté	Oui : Revendications 1-11 Non : Revendications
Activité inventive	Oui : Revendications 1-11 Non : Revendications
Possibilité d'application industrielle	Oui : Revendications 1-11 Non : Revendications

**2. Citations et explications  
voir feuille séparée**

**VII. Irrégularités dans la demande internationale**

Les irrégularités suivantes, concernant la forme ou le contenu de la demande internationale, ont été constatées :  
**voir feuille séparée**

**VIII. Observations relatives à la demande internationale**

Les observations suivantes sont faites au sujet de la clarté des revendications, de la description et des dessins et de la question de savoir si les revendications se fondent entièrement sur la description :  
**voir feuille séparée**

**Concernant le point V**

**Déclaration motivée selon l'article 35(2) quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle; citations et explications à l'appui de cette déclaration**

Il est fait référence aux documents suivants:

**D1:** US-A-5 688 431 (MINOR BARBARA HAVILAND) 18 novembre 1997

**D2:** DE 197 25 360 A (SOLVAY FLUOR & DERIVATE) 25 juin 1998

**1. Nouveauté**

**1.1.** L'objet des revendications 1-11 est réputé nouveau par rapport à l'art antérieur disponible (Article 33(2) PCT).

**D1**, qui est considéré comme l'art antérieur le plus proche, décrit des compositions réfrigérantes à base d'octafluorobutane et d'un composé de formule  $C_aF_bH_{2a+2-b}$ , où  $a = 3$  ou  $4$  et  $b = 1$  à  $8$ . Les compositions de D1 peuvent notamment prendre la forme d'un mélange de **1,1,2,2,3,3,4,4-octafluorobutane (HFC-338pcc)** et de **1,1,1,3,3-pentafluorobutane (HFC-365mfc)** (colonne 3, lignes 43-47, revendication 1(c)). **Des composition azéotropiques ou pseudo-azéotropiques binaires** peuvent être obtenues à partir de ces composés dans les proportions suivantes (c. 4, l. 5-9): 37,4 % en poids de HFC-338pcc et 62,6 % en poids de HFC-365mfc à 25°C (exemple 1). D'autres composés, comme par exemple des hydrocarbures aliphatiques, des alcanes d'hydrocarbures fluorés, des propanes fluorés, des esters d'hydrocarbures, des hydrocarbures chlorés et fluorés, des **hydrocarbures fluorés**, des hydrocarbures chlorés, des chlorocarbones et des composés perfluorés, ainsi que différents additifs, notamment un **tensio-actif**, peuvent être ajouté à ces compositions (colonne 14, lignes 38-56). Ces compositions trouvent une utilisation en tant que **solvant de dégraissage, fluide caloporteur ou agent de séchage** (colonne 2, lignes 17-30).

L'objet de la revendication 1 diffère de D1 par le nombre d'atomes de carbone de l'hydrofluorocarbure qu'on adjoint à la composition.



## **2. Activité inventive**

**2.1.** Une activité inventive peut être reconnue pour l'objet des **revendications 1-9** (Article 33(3) PCT).

Le problème que se propose de résoudre la présente invention peut être considéré comme étant de trouver d'autres composés fluorés ininflammables constituant une alternative aux octafluorobutanes dans les compositions à base de 1,1,1,3,3-pentafluorobutane.

La solution proposée dans la **revendication 1** de la présente demande, consistant à utiliser un hydrofluorocarbure comprenant au moins 5 atomes de carbone, est considérée comme inventive (Article 33(3) PCT) pour les raisons suivantes.

L'utilisation d'un hydrofluorocarbure avec du 1,1,1,3,3-pentafluorobutane est bien connue de la personne du métier. Toutefois, les hydrofluorocarbures de D1 ne contiennent au maximum que 4 atomes de carbone alors que dans D2, ce sont des hydrofluorocarbures possédant de 2 à 3 atomes de carbone qui sont ajoutés au 1,1,1,3,3-pentafluorobutane. Les enseignements de ces documents, pris seuls ou combinés, n'inciteraient donc pas la personne du métier à remplacer l'octafluorobutane de D1 par un hydrofluorocarbure ayant au moins 5 atomes de carbone, et implique donc une activité inventive (Article 33(3) PCT).

L'objet des **revendications dépendantes 2-9** est donc également considéré comme inventif.

**2.2.** L'utilisation des compositions selon les revendications 1-9, objet des **revendications 10 et 11**, est donc également inventive (Article 33(3) PCT).

## **3. Application industrielle**

L'objet des **revendications 1-11** est susceptible d'application industrielle (Article 34(4) a) i) PCT).

## **Concernant le point VII**

### **Irrégularités dans la demande internationale**

Contrairement à ce qu'exige la règle 5.1 a) ii) PCT, la description n'indique pas l'état de la technique antérieure pertinent exposé dans les documents D1 et D2, et ne cite pas ces documents.

#### **Concernant le point VIII**

#### **Observations relatives à la demande internationale**

**1.** La définition de la composition azéotropique par le résultat recherché, comme c'est le cas dans les **revendications 5 et 8**, n'est pas acceptable (Article 6 PCT). En effet, le champ défini par les revendications doit être aussi précis que l'invention le permet, c'est-à-dire que les proportions de 1,1,1,3,3-pentafluorobutane et de solvant organique non fluoré ou de perfluorocarbure nécessaires à la formation d'un azéotrope ou d'un pseudo-azéotrope doivent impérativement figurer dans lesdites revendications (Directives III-4.7. PCT).

Par contre, la **revendication 9** contient une définition suffisamment précise de compositions azéotropiques obtenues à partir de 1,1,1,3,3-pentafluorobutane et de perfluoro-carbures.

**2.** Il convient de remarquer que l'utilisation d'expressions telles que "...dont le contenu est incorporé par référence dans la présente demande" à la page 5, lignes 25-26, et à la page 6, lignes 10-11, n'est pas autorisée dans tous les pays contractants. Lors du passage à la phase régionale/nationale, cette expression devrait donc être supprimée.

maximum. Les mélanges dont le point d'ébullition diffère du point d'ébullition de l'azéotrope vrai de 0,2°C au maximum sont préférés. Les mélanges dont le point d'ébullition diffère du point d'ébullition de l'azéotrope vrai de 0,1°C au maximum sont particulièrement préférés.

- 5 Le 1,1,1,3,3-pentafluorobutane et le perfluoropentane forment un azéotrope ou un pseudo-azéotrope binaire lorsque leur mélange contient environ de 50 à 87 % en poids de perfluoropentane. Les compositions binaires contenant environ de 50 à 70 % en poids de perfluoropentane sont préférées. Les compositions binaires contenant environ de 50 à 60 % en poids sont
- 10 particulièrement préférées. Les compositions binaires contenant environ de 65 à 80 % en poids de perfluoropentane sont également préférées. Les compositions binaires contenant environ de 70 à 78 % en poids sont particulièrement préférées. Sous une pression de 100,1  $\pm$  0.2 kPa, la composition binaire constituée essentiellement d'environ 26 % en poids de 1,1,1,3,3-pentafluorobutane et
- 15 d'environ 74 % en poids de perfluoropentane constitue un azéotrope vrai, dont le point d'ébullition est d'environ 24.4°C.

- Le 1,1,1,3,3-pentafluorobutane et le perfluorohexane forment un azéotrope ou un pseudo-azéotrope binaire lorsque leur mélange contient environ de 20 à 60 % en poids de perfluorohexane. Les compositions binaires contenant
- 20 environ de 25 à 45 % en poids de perfluorohexane sont préférées. Les compositions binaires contenant environ de 32 à 42 % en poids de perfluorohexane sont particulièrement préférées. Les compositions binaires contenant environ de 35 à 40 % en poids de perfluorohexane sont tout particulièrement préférées. Sous une pression de 101,2  $\pm$  0.5 kPa, la
- 25 composition binaire constituée essentiellement d'environ 64 % en poids de 1,1,1,3,3-pentafluorobutane et d'environ 36 % en poids de perfluorohexane constitue un azéotrope vrai, dont le point d'ébullition est d'environ 36.4 °C. Cette composition est tout particulièrement préférée.

- L'invention concerne aussi des compositions comprenant du 1,1,1,3,3-pentafluorobutane, au moins un composé fluoré ininflammable et au moins un
- 30 solvant organique non fluoré. A titre de composé fluoré ininflammable sont préférés les composés fluorés ininflammables mentionnés plus haut.

- A titre de solvant organique non fluoré conviennent bien, par exemple, les hydrocarbures, les hydrocarbures chlorés, les alcools, les esters ou cétones ou les
- 35 éthers.

A titre de solvant organique non fluoré conviennent aussi les

- 4a-

hydrocarbures halogénés et les esters ou cétones aliphatiques, alicycliques ou aromatiques.

choisie en fonction de la polarité et l'inflammabilité souhaitées de la composition. Généralement cette teneur est d'au plus 20 % en poids. De préférence elle est d'au plus 10 % en poids. Lorsqu'un solvant organique non fluoré est présent, sa teneur est généralement d'au moins 1 % en poids. De préférence elle est d'au moins 2 % en poids. Des exemples particuliers des compositions selon l'invention comprennent du 1,1,1,3,3-pentafluorobutane et un solvant organique non fluoré dans des proportions dans lesquelles ils forment un azéotrope ou un pseudo-azéotrope.

Les compositions selon l'invention contiennent éventuellement un agent tensioactif. Tout agent tensioactif bien connu en soi et compatible avec les compositions selon l'invention peut être utilisé. Avantageusement on met en œuvre l'agent tensioactif avec des compositions selon l'invention comprenant au moins un solvant organique non fluoré, telles que décrites plus haut. En effet ces compositions conviennent particulièrement bien pour atteindre une bonne solubilité de l'agent tensioactif tout en conservant de bonnes propriétés quant à l'ininflammabilité des compositions.

Quelques agents tensioactifs utilisables dans les compositions selon l'invention sont décrits, par exemple dans ULLMANN'S Encyclopedia of Industrial Chemistry, 5<sup>th</sup> ed., 1987, vol. A8, p. 338-350. On peut mettre en œuvre des agents tensioactifs cationiques, anioniques, non-ioniques et amphotères. On peut utiliser par exemple des acides gras, des esters gras, des alkylbenzènesulfonates, des alkanesulfonates, des sulfonates d' $\alpha$ -oléfine, des esters d'acides gras  $\alpha$ -sulfonés (SES), des sulfates d'alkyle, des sulfates d'éther alkyle, des composés quaternaires d'ammonium, des éthers d'alkyle de polyéthylèneglycol, des éthers phényle de polyéthylèneglycol, les alcanolamides d'acide gras, les éthers polyglycol d'alcool gras, des copolymères-bloc d'oxyde d'éthylène et d'oxyde de propylène, des alkylbétaines, des alkylsulfobétaines, des sels de tétralkylammonium d'acides mono- ou dialkylphosphoriques ou les agents tensioactifs comprenant au moins un groupement imidazoline. On peut également mettre en œuvre des agents tensioactifs tels que décrits plus haut contenant au moins un substituant fluor. Plus spécifiquement on peut mettre en œuvre des agents tensioactifs comprenant au moins une chaîne alkyle polyfluorée ou un substituant aromatique polyfluoré.

- 8a-

Dans des compositions selon l'invention utilisables notamment comme agent de séchage, on met en œuvre, de préférence un agent tensioactif de type imidazoline. De façon particulièrement préférée, l'imidazoline répond à la formule :

## REVENDICATIONS

- 1 - Compositions comprenant du 1,1,1,3,3-pentafluorobutane et plus de 5 % en poids d'au moins un composé fluoré ininflammable qui ne présente pas de point d'éclair déterminé selon la norme ISO 1523 sélectionné parmi les hydrofluorocarbures comprenant au moins 5 atomes de carbone, les perfluorocarbures, les amines fluorées et les éthers fluorés.
- 2 - Compositions selon la revendication 1 comprenant en outre au moins un solvant organique non fluoré.
- 3 - Compositions selon la revendication 2 dans lesquelles le solvant organique non fluoré est sélectionné parmi les hydrocarbures, les hydrocarbures halogénés, les esters ou cétones aliphatiques, alicycliques ou aromatiques, les alcools ou les éthers.
- 4 - Compositions selon la revendication 2 ou 3, dans lesquelles le solvant organique non fluoré est l'acétate d'éthyle, le 1,2-dichloréthylène, le méthanol, l'éthanol, l'isopropanol ou l'isobutanol.
- 5 - Compositions selon l'une quelconque des revendications 2 à 4 comprenant du 1,1,1,3,3-pentafluorobutane et un solvant organique non fluoré dans des proportions dans lesquelles ils forment un azéotrope ou un pseudo-azéotrope.
- 6 - Compositions selon l'une quelconque des revendications 1 à 5 comprenant un agent tensioactif, de préférence de type imidazoline ou alkylbenzènesulfonate.
- 7 - Compositions selon l'une quelconque des revendications 1 à 6 dans lesquelles le composé fluoré ininflammable est le 2,3-dihydrodécafluoropentane (HFC-43-10mee), la perfluorotriéthylamine, le perfluorobutyl-méthyléther, le perfluoropentane ou le perfluorohexane.
- 8 - Compositions selon l'une quelconque des revendications 1 à 7 comprenant du 1,1,1,3,3-pentafluorobutane et au moins un perfluorocarbure dans des proportions dans lesquelles ils forment un azéotrope ou un pseudo-azéotrope.

- 19 -

- 9 - Composition selon la revendication 8 comprenant un mélange azéotropique ou pseudo-azéotropique, constitué essentiellement de 40 à 80 % en poids de 1,1,1,3,3-pentafluorobutane et de 20 à 60 % en poids de perfluorohexane ou comprenant un mélange azéotropique ou pseudo-azéotropique constitué essentiellement de 13 à 50 % en poids de 1,1,1,3,3-pentafluorobutane et de 50 à 87 % en poids de perfluoropentane
- 5

10 - Utilisation des compositions selon l'une quelconque des revendications 1 à 9, dans des applications solvant, agent de séchage, solvant de dégraissage, agent de fixation de toners, réfrigérant ou fluide caloporteur.

- 10      11 - Utilisation selon la revendication 10 comme produit de remplacement du CFC-11 (trichlorofluorométhane) ou comme produit de remplacement du CFC-113 (1,1,2-trichlorotrifluoroéthane).